

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-011702

(43)Date of publication of application : 16.01.1992

(51)Int.Cl.

H01F 1/08

H01F 1/113

H01F 41/02

(21)Application number : 02-112061

(71)Applicant : YAMAUCHI CORP

(22)Date of filing : 28.04.1990

(72)Inventor : FUKUYAMA YASUO
HAYAKAWA KENICHI
FUJIOKA TERUO

(54) MANUFACTURE OF RESIN MAGNET

(57)Abstract:

PURPOSE: To eliminate need of a large-sized kneader, simplify processing with a signal process at a normal temperature and reduce a cost of a magnet by powder-mixing particulate synthetic resin powder and magnetic powder, compression-molding the mixture with or without a magnetic field applied and heating it.

CONSTITUTION: As synthetic resin powder to be a binder, polymethyl methacrylate, styrene-methyl methacrylate copolymer, low-pressure polyethylene, phenol, etc., may be used wherein the particle diameter is approximately 0.1 to 30 μ m. Ferrite powder, rare earth cobalt powder, alnico powder may be used as magnetic powder, wherein the particle diameter is approximately 0.1 to 500 μ m. By mixing such powder, particulates of synthetic resin are to be uniformly and electrically adsorbed to a surface of magnetic powder. In concrete, the powder mixture is compression-molded at a temperature of 2 to 20ton/cm² for 2 to 10 seconds and heated to 50 to 250° C so that the resin powder is either melted or hardened to make a resin magnet.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C) 1998,2003 Japan Patent Office

⑩ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A) 平4-11702

⑬ Int. Cl. 5

H 01 F 1/08
1/113
41/02

識別記号

庁内整理番号

A 7371-5E
7371-5E
G 2117-5E

⑭ 公開 平成4年(1992)1月16日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全5頁)

⑮ 発明の名称 樹脂磁石の製造法

⑯ 特 願 平2-112061

⑰ 出 願 平2(1990)4月28日

⑱ 発明者 福山 泰夫 京都府宇治市明星町1丁目20番46号
⑲ 発明者 早川 賢一 大阪府枚方市長尾谷町2丁目41番10号
⑳ 発明者 藤岡 鍾郎 大阪府枚方市東香里新町12番16号
㉑ 出願人 ヤマウチ株式会社 大阪府枚方市招提田近2丁目7番地
㉒ 代理人 弁理士 岸本 瑛之助 外3名

明細書 (2)

1. 発明の名称

樹脂磁石の製造法

2. 特許請求の範囲

微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末とを粉体混合し、得られた粉体混合物を、磁界を印加しながらまたは印加することなく圧縮成形し、加熱することを特徴とする、樹脂磁石の製造法。

3. 発明の詳細な説明

産業上の利用分野

この発明は、例えばテープレコーダー、ビデオテープレコーダー等の精密音響機器、およびモータのロータやステータなどに用いられる、樹脂磁石の製造法に関するものである。

従来の技術

従来、この種の樹脂磁石を製造するには、射出成形による方法が知られている。この従来法によれば、合成樹脂粉末と磁性粉末との混合物を、樹脂の軟化温度以上に加熱した後、混練し、混練物を射出成形するものである。

また従来、樹脂磁石を圧縮成形により製造する方法も知られているが、この場合圧縮成形用原料である磁性粉コンパウンドは、熱硬化性樹脂を溶剤に希釈し、これに磁性粉を浸漬することにより、磁性粉と樹脂との均一分散を図ったものであった。

発明が解決しようとする課題

しかしながら、上記従来の前者の方法によれば、大型の混練機を必要とし、大掛かりな工程を経て原料を射出成形機に供給する必要があり、ひいては樹脂磁石の製造コストが高くつくという問題があった。しかも射出成形時の原料の流动性を良好な状態に維持するためには、どうしても樹脂の配合量を多くする必要があり、これでは得られた樹脂磁石の磁気特性が低下するという問題があった。

また後者の方法によれば、樹脂磁石原料を得るために乾燥によって溶剤を除去し、あるいは回収し、また乾燥物を粉碎するといった工程が必要であり、従って工程数が非常に多く、結局

特開平4-11702 (2)

樹脂磁石の製造が非常に面倒で、かつ設備費が高くつき、コスト高になるという問題があった。

またとくに、溶剤に希釈した熱硬化性樹脂と磁性粉とよりなる磁性粉コンパウンドは、保存期間が限定され、通常これは非常に短いので、製品の品質の安定化を計ることができないという問題があった。

この発明の目的は、上記の従来技術の問題を解決し、従来のような大型の混練機を必要とせず、樹脂磁石原料を常温できわめて簡単にかつ作業性良く均一に混合することができて、圧縮成形により樹脂磁石を非常に簡単にかつ安価に製造することができるため、経済性が高く、しかも磁性粉末に対する樹脂の配合量が非常に少なくてすむため、得られた樹脂磁石はすぐれた磁気特性と物性を有しており、また樹脂磁石原料の保存期間が限定されず、従って樹脂磁石製品の品質の安定化を計ることができる、樹脂磁石の製造法を提供しようとするにある。

課題を解決するための手段

アルニコ系、ネオジウム-鉄-ボロン系などの磁性粉末を使用する。

磁性粉末の粒径は、通常の大きさのものであれば良く、例えば0.1~500ミクロンの大きさを有している。なお、合成樹脂粉末は、磁性粉末に対して約10分の1以下の粒径を有しているのが、好ましい。

微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末とを粉体混合すると、得られる粉体混合物は、磁性粉末の表面に合成樹脂微粒子が電気的に均一に吸着する。

すなわち、一般に接触する二つの物体の表面には相互に異なる正または負の極性の帶電を示し、電気的に吸着し合うものであるが、この場合、いわゆる帶電列の位置の差により、合成樹脂粉末と磁性粉末のうちのいずれか一方の表面に、負の荷電が帶電し、同他方の表面に、正の荷電が帶電して、両者は互いに電気的に吸着し合うものである。

また、帶電列中での位置が相互に離れている

この発明は、上記の目的を達成するために、微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末とを粉体混合し、得られた粉体混合物を、磁界を印加しながらまたは印加することなく圧縮成形し、加熱することを特徴とする、樹脂磁石の製造法を要旨としている。

上記合成樹脂粉末はバインダーとして用いられるもので、これには、例えはポリメタアクリル酸メチル、ステレン-メタアクリル酸メチル共重合体、メタアクリル酸メチル-メタアクリル酸ブチル共重合体、エチレン-アクリル共重合体、低圧ポリエチレン等の熱可塑性樹脂、およびフェノール、エポキシ、メラミン等のいわゆるB段階の熱硬化性樹脂の粉末があげられる。

ここで、微粒子化した合成樹脂粉末の粒径は、0.01~30ミクロンであり、好ましくは10ミクロン以下、望ましくは1ミクロン以下である。

また上記磁性粉末は、とくに限定されることなく、フェライト系、希土類・コバルト系

ものほど帶電量が多くなる傾向にあるので、合成樹脂粉末と磁性粉末は、帶電列中での位置が相互に離れているものを使用するのが好ましい。

なお、上記合成樹脂粉末の粒径が30ミクロンを越えて大きい場合には、磁性粉末との混合が均一に行なえず、得られる樹脂磁石の磁気特性が低下するなどの問題がある。

また粒径が0.01ミクロン未満の合成樹脂粉末は、その製造が困難であるばかりか、あまり細かすぎるために、かえって取扱いが面倒であり、作業性が悪くなる。

上記微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末との配合割合は、合成樹脂粉末0.1~20重量%に対して、磁性粉末99.9~80重量%であるが、合成樹脂粉末はできるだけ少ない方が、得られる樹脂磁石の磁気特性が向上するので、好ましく、10重量%以下、望ましくは5重量%以下であるのが、良い。

しかしながら、合成樹脂粉末が0.1重量%未満であれば、少なすぎてバインダーとしての

特開平4-11702 (3)

作 用

図面を参照すると、この発明の方法によれば、例えば第1図に示すようなリング状の樹脂磁石(1)を製造することができる。樹脂磁石(1)の形状は、その他、板状、角形ブロック状など、勿論任意である。

また、この発明の方法においては、微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末とを単に粉体混合するだけで、樹脂磁石原料を得ることができる。この場合、従来のような大型の混練機を必要とせず、樹脂磁石原料を单一の工程で、しかも常温で簡単に簡単にかつ作業性良く均一に混合することができる。

第2図に、合成樹脂粉末(3A)および磁性粉末(2)の粉体混合物の顕微鏡写真の状態を図面化した拡大組織を示す。同図から分かるように、粉体混合物の合成樹脂粉末(3A)と磁性粉末(2)の表面に相互に異なる負および正の荷電が帯電することにより、磁性粉末(2)の表面に合成樹脂粉末(3A)が電気的に均一に吸着する。

化を計ることができるものである。

実 施 例

つぎに、この発明の実施例を比較例とともに説明する。

実施例1および2

この発明の方法により第1図に示すリング状の樹脂磁石(1)を製造した。

すなわち、まずバリウムフェライト磁性粉末(商品名GP-500、戸田工業株式会社製)285gと、ポリメタアクリル酸メチル微粉末(粒径0.05~0.08ミクロン、帯電量-60マイクロクーロン/g、分子量50万)15g(従って樹脂粉末は5重量%)をブレンダー内に投入し、これらを均一になるまで約20分間混合した。

つぎに、得られた粉体混合物を圧縮成形機のリング状の金型内に充填し、6ton/cm²の圧力で、15000エルステッド(0e)の印加磁界を印加しながら、および印加することなく、それぞれ5秒間圧縮成形し、ついで200℃で1時間加熱し、

作用を充分に果たし得ないので、好ましくない。

微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末との粉体混合物は、これを2~20ton/cm²の高い圧力で、例えば2~10秒間圧縮成形したのち、加熱し、合成樹脂粉末を溶融ないしは硬化反応せしめて樹脂磁石を形成するものである。

ここで、加熱温度は、使用する合成樹脂粉末の種類によって異なるが、通常50~250℃である。

なお加熱は、通常、圧縮成形の後に行なうが、圧縮成形と同時に加熱を行なうものとすれば、单一の工程で樹脂磁石成形体を製造することができるという利点がある。

また上記圧縮成形は、磁界を印加することなく、あるいはまた例えば5000~50000エルステッド(0e)の磁界を印加しながら行なうものである。

磁界を印加することなく圧縮成形を行なった場合には、成形後、得られた樹脂磁石成形体に、適宜の着磁装置により着磁を施せば良い。

この粉体混合物を圧縮成形機の所定の金型内に充填し、磁界を印加しながらまたは印加することなく圧縮成形し、加熱して、上記樹脂磁石(1)を形成する。

第3図に、得られた樹脂磁石(1)の顕微鏡写真の状態を図面化した拡大組織図を示す。同図から分かるように、合成樹脂粉末(3A)が溶融ないしは硬化反応することにより形成された合成樹脂結合層(3B)が磁性粉末(2)の表面に均一に付着して、磁性粉末(2)相互をきわめて緊密にかつ強固に結合しており、従って磁性粉末(2)の細密充填が可能となり、得られた樹脂磁石(1)は顕著にすぐれた磁気特性と物性を有するものである。

なお、樹脂磁石の原料である合成樹脂粉末(3A)と磁性粉末(2)よりなる粉体混合物は、単純に粉体同志の混合物であるため、これを長期間保存しても、品質に変化を生じることが非常に少なく、従って粉体混合物は、その保存期間が限定されず、樹脂磁石製品(1)の品質の安定

特開平4-11702(4)

ポリメタアクリル酸メチル微粉末を溶融せしめたのち、放冷して、リング状の着磁樹脂磁石（実施例1）および未着磁の樹脂磁石成形体を製造した。そして後者の未着磁の樹脂磁石成形体については、所定の着磁装置により6000エルステッド(0e)の印加磁界を印加して、着磁を施し、着磁樹脂磁石（実施例2）を得た。

つぎに、これらの樹脂磁石について、比重および曲げ強度（kg/mm²）の物性と、最大エネルギー積（B_H）MAX、残留磁束密度（B_r）、保磁力（B_{Hc}）および固有保磁力（J_{Hc}）の磁気特性を測定し、得られた結果を、下表にまとめて示した。

なお曲げ強度は、JIS K 6911（横層管、圧縮速度：5mm/分）に準拠して測定した。

実施例3

ネオジウム系磁性粉末（商品名MQパウダーA、ゼネラル・モーターズ社製）39.2gと、実施例1と同じポリメタアクリル酸メチル微粉末8g（従って樹脂粉末は2重量%）を使用し、

石を得た。

そして、得られた樹脂磁石について上記実施例1の場合と同様に物性と磁気特性とを測定し、得られた結果を下表にまとめて示した。

比較例

比較のために、従来の射出成形法により樹脂磁石を製造した。

まず、実施例1と同じバリウムフェライト磁性粉末8kgと、粉末状ナイロン樹脂（商品名ダイアミドL1626、ダイセル株式会社製）2kg（従って樹脂含有量は20重量%）をヘンシェルミキサーで均一に混合する。ついでこの混合物を200～250℃で混練し、ペレタイザーでインジェクション成形に適するように粒状化する。

こうして得られた原料を230～250℃に加熱したのち、7.0～10.0kg/cm²の圧力で射出成形する。これを40～60kg/cm²で保圧した後、所定の着磁装置により6000エルステッド(0e)の印加磁

また圧縮成形を圧力4ton/cm²とする外は、上記実施例1の場合と全く同様に操作して、未着磁の樹脂磁石成形体を製造した。ついでこの未着磁の樹脂磁石成形体について、所定の着磁装置により5000エルステッド(0e)の印加磁界を印加して、着磁を施し、着磁樹脂磁石を得た。

そして、得られた樹脂磁石について上記実施例1の場合と同様に物性と磁気特性とを測定し、得られた結果を下表にまとめて示した。

実施例4

実施例1と同じバリウムフェライト磁性粉末27.0gと、粉末状フェノール樹脂（商品名ベルバールS-890、粒径1～20ミクロン、鐘紡株式会社製）30g（従って、樹脂粉末は10重量%）を使用する外は、上記実施例1の場合と全く同様に操作して、未着磁の樹脂磁石成形体を製造した。

ついでこの未着磁の樹脂磁石成形体について、所定の着磁装置により6000エルステッド(0e)の印加磁界を印加して、着磁を施し、着磁樹脂磁

石を得た。

また、得られた樹脂磁石について上記実施例1の場合と同様に物性と磁気特性とを測定し、得られた結果を下表にまとめて示した。

物 性		磁 気 特 性				
樹脂磁石	比重	曲げ強度 kg/cm ²	最大エネルギー	残留磁束密度 (BH) MAX : NODc	保磁力 B _r : NG B _{Hc} : NOb H _C : KOc	耐衝撃力
実施例 1	3.40	2.00	1.35	2.40	1.90	2.10
実施例 2	3.40	2.00	0.48	1.46	1.20	2.16
実施例 3	5.49	2.88	7.3	5.7	5.2	18.0
実施例 4	2.97	1.60	0.45	1.41	1.17	2.34
比較例	2.85	12.37	0.23	1.0	0.80	2.10

(注) 1. 実施例 1 のみ圧縮成形機で印加磁界を印加しながら正縮成形を行ない、

他の実施例 2 ~ 4 では、圧縮成形機で印加することなく正縮成形したのち、
得られた未磁化的樹脂磁石成形体に印加磁界を印加して、磁化を施した。

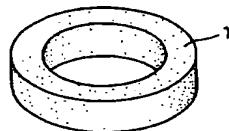
(注) 2. 曲げ強度は、JIS K 6911 (試験圧: 5mm/分) に準拠して測定した。

上記表から明らかなように、この発明による樹脂磁石の製造法によれば、従来法に比べて顯著にすぐれた磁気特性を有する樹脂磁石を製造することができるものである。

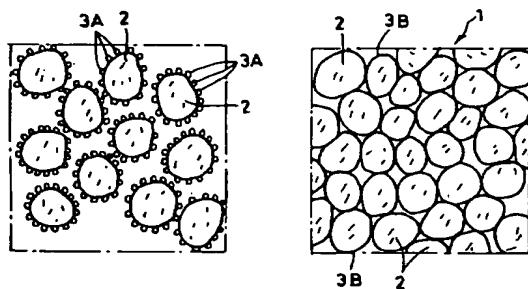
なお比較例において、樹脂磁石の曲げ強度の数値が大きいのは、樹脂の配合量が多いからである。しかしこの場合には、相対的に樹脂磁石の磁気特性が劣る結果となっている。

発明の効果

この発明による樹脂磁石の製造法は、上述のように、微粒子化した合成樹脂粉末と磁性粉末とを粉体混合し、得られた粉体混合物を、磁界を印加しながらまたは印加することなく圧縮成形し、加熱することを特徴とするもので、この発明の方法によれば、従来のような大型の混練機を必要とせず、樹脂磁石原料を单一の工程で、しかも常温で簡単に簡単にかつ作業性良く均一に混合することができて、圧縮成形により樹脂磁石を非常に簡単にかつ安価に製造することができ、経済性が高いものである。



第1図



第2図

第3図

しかも磁性粉末に対する樹脂の配合量が非常に少なくてすむため、得られた樹脂磁石は顯著にすぐれた磁気特性と物性を有している。

また樹脂磁石の原料である合成樹脂粉末と磁性粉末とよりなる粉体混合物は、その保存期間が限定されず、従って、樹脂磁石製品の品質の安定化を計ることができるという効果を奏する。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の方法により製造された樹脂磁石の斜視図、第2図は本発明の製造法において合成樹脂粉末および磁性粉末の粉体混合物の顕微鏡写真の状態を図面化した粉体混合物の拡大組織図である。第3図は本発明の方法により製造された樹脂磁石の顕微鏡写真の状態を図面化した樹脂磁石の拡大組織図である。

(1) …樹脂磁石、(2) …磁性粉末、(3A)…合成樹脂粉末、(3B)…合成樹脂結合層。

以上

特許出願人 ヤマウチ 株式会社

代理人 岸本 球之助 (外3名)

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-312207

(43)Date of publication of application : 02.12.1997

(51)Int.Cl.

H01F 1/08

B22F 3/00

H01F 7/02

H01F 41/02

(21)Application number : 08-127538

(71)Applicant : SEIKO EPSON CORP

(22)Date of filing : 22.05.1996

(72)Inventor : IKUMA TAKESHI

AKIOKA KOJI

SHIRAI ISATO

(54) COMPOSITION FOR RARE-EARTH BONDED MAGNET USE, RARE-EARTH BONDED MAGNET AND
MANUFACTURE OF RARE-EARTH BONDED MAGNET

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a rare-earth bonded magnet, which is superior in moldability and has a low void constant, by a method wherein a composition for the rare- earth bonded magnet use contains rare-earth magnet powder and bonding resin powder and the mean particle diameters and densities of the respective powders are specified.

SOLUTION: A composition for rare-earth bonded magnet use contains rare- earth magnet powder and bonding resin powder. Moreover, it is preferable that the composition contains an antioxidant. Here, when the mean particle diameter and the density of the magnet powder are respectively set in D_1 [μm] and ρ_1 [g/cm^3] and the mean particle diameter and the density of the resin powder are respectively set in D_2 [μm] and ρ_2 [g/cm^3], the composition satisfies the formula. It is preferable that the addition amount of the antioxidant in the composition is set at 0.1 to 2wt%. Moreover, it is preferable that the content of the resin powder in the composition is set at 1 to 10wt%.

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 2.0$$

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 03.10.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application converted
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of
rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-312207

(43)公開日 平成9年(1997)12月2日

(51) Int.Cl.⁶
H 01 F 1/08
B 22 F 3/00
H 01 F 7/02
41/02

識別記号 庁内整理番号

F I
H 01 F 1/08
B 22 F 3/00
H 01 F 7/02
41/02

技術表示箇所
A
F
A
G

審査請求 未請求 請求項の数21 O L (全 13 頁)

(21)出願番号

特願平8-127538

(22)出願日

平成8年(1996)5月22日

(71)出願人 000002369

セイコーエプソン株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目4番1号

(72)発明者 井熊 健

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ
ーエプソン株式会社内

(72)発明者 秋岡 宏治

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ
ーエプソン株式会社内

(72)発明者 白井 勇人

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ
ーエプソン株式会社内

(74)代理人 弁理士 鈴木 喜三郎 (外1名)

(54)【発明の名称】 希土類ボンド磁石用組成物、希土類ボンド磁石および希土類ボンド磁石の製造方法

(57)【要約】

【課題】成形性に優れ、低空孔率であり、磁気特性、機械的強度、耐食性に優れた希土類ボンド磁石を得ることができる希土類ボンド磁石用組成物を提供すること。

【解決手段】本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、希

土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含んでおり、希土類磁石粉末の平均粒径をD₁ [μm]、密度をρ₁ [g/cm³] とし、結合樹脂粉末の平均粒径をD₂ [μm]、密度をρ₂ [g/cm³] としたとき、下記式(1)を満足する。

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots (1)$$

【特許請求の範囲】

【請求項1】 希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む希土類ボンド磁石用組成物であって、前記希土類磁石粉末の平均粒径をD₁ [μm]、密度を

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

【請求項2】 希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む混合物または該混合物を混練してなる希土類ボンド磁石用組成物であって、前記希土類磁石粉末の平均粒径をD₁ [μm]、密度を

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

【請求項3】 希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む混合物を前記結合樹脂粉末の軟化温度以上の温度で混練してなる希土類ボンド磁石用組成物であって、前記希土類磁石粉末の平均粒径をD₁ [μm]、密度をρ₁ [g/

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

【請求項4】 さらに酸化防止剤を含む請求項1ないし3のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項5】 希土類ボンド磁石用組成物中の前記酸化防止剤の含有量が、0.1~2.0wt%である請求項4に記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項6】 前記結合樹脂粉末の平均粒径D₂は、10~200μmである請求項1ないし5のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項7】 希土類ボンド磁石用組成物中の前記結合樹脂粉末の含有量が、1~10wt%である請求項1ないし6のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項8】 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素と、Coを主とする遷移金属とを基本成分とするものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項9】 前記希土類磁石粉末は、R(ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項10】 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項11】 前記希土類磁石粉末は、請求項8、9および10に記載の希土類磁石粉末のうちの少なくとも2種を混合したものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項12】 請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を用いて製造されたことを特徴とする希土類ボンド磁石。

【請求項13】 請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を用いて圧縮成形により製造されたことを特徴とする希土類ボンド磁石。

ρ₁ [g/cm³] とし、前記結合樹脂粉末の平均粒径をD₂ [μm]、密度をρ₂ [g/cm³] としたとき、下記式(1)を満足することを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

ρ₁ [g/cm³] とし、前記結合樹脂粉末の平均粒径をD₂ [μm]、密度をρ₂ [g/cm³] としたとき、下記式(1)を満足することを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

cm³] とし、前記結合樹脂粉末の平均粒径をD₂ [μm]、密度をρ₂ [g/cm³] としたとき、下記式(1)を満足することを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

【請求項14】 請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を用いて成形圧が50kgf/mm²以下の圧縮成形により製造されたことを特徴とする希土類ボンド磁石。

【請求項15】 空孔率が2.8vol%以下である請求項12ないし14のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項16】 無磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積(BH)_{max}が4.5MG0e以上である請求項12ないし15のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項17】 磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積(BH)_{max}が10MG0e以上である請求項12ないし15のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項18】 請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を製造し、この希土類ボンド磁石用組成物を用いて磁石形状に成形することを特徴とする希土類ボンド磁石の製造方法。

【請求項19】 請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を製造し、この希土類ボンド磁石用組成物を用いて温間成形により磁石形状に成形することを特徴とする希土類ボンド磁石の製造方法。

【請求項20】 前記温間成形は、前記結合樹脂の軟化温度以上の温度で行う請求項19に記載の希土類ボンド磁石の製造方法。

【請求項21】 前記温間成形は、成形圧が50kgf/mm²以下の圧縮成形である請求項19または20に記載の希土類ボンド磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、希土類ボンド磁石用組成物、希土類ボンド磁石およびその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 希土類ボンド磁石は、希土類磁石粉末と結合樹脂(有機バインダー)との混合物(コンパウン

ド) を所望の磁石形状に加圧成形して製造されるものであるが、その成形方法には、圧縮成形法、射出成形法および押出成形法が利用されている。

【0003】圧縮成形法は、前記コンパウンドをプレス金型中に充填し、これを圧縮成形して成形体を得、その後、加熱して結合樹脂である熱硬化性樹脂を硬化させて磁石を製造する方法である。この方法は、他の方法に比べ、結合樹脂の量が少なくて成形が可能であるため、得られた磁石中の樹脂量が少なくなり、磁気特性の向上にとって有利である。

【0004】押出成形法は、加熱溶融された前記コンパウンドを押出成形機の金型から押し出すとともに冷却固化し、所望の長さに切断して、磁石とする方法である。この方法では、磁石の形状に対する自由度が大きく、薄肉、長尺の磁石をも容易に製造できるという利点があるが、成形時における溶融物の流動性を確保するために、結合樹脂の添加量を圧縮成形法のそれに比べて多くする必要があり、従って、得られた磁石中の樹脂量が多く、磁気特性が低下するという欠点がある。

【0005】射出成形法は、前記コンパウンドを加熱溶融し、十分な流動性を持たせた状態で該溶融物を金型内に注入し、所定の磁石形状に成形する方法である。この方法では、磁石の形状に対する自由度は、押出成形法に比べさらに大きく、特に、異形状の磁石をも容易に製造できるという利点がある。しかし、成形時における溶融物の流動性は、前記押出成形法より高いレベルが要求されるので、結合樹脂の添加量は、押出成形法のそれに比べてさらに多くする必要があり、従って、得られた磁石中の樹脂量が多く、磁気特性がさらに低下するという欠点がある。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】ところで、以上のような各方法により製造される従来の希土類ボンド磁石は、

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

(2) 希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む混合物または該混合物を混練してなる希土類ボンド磁石用組成物であって、前記希土類磁石粉末の平均粒径を D_1 [μm]、密度を ρ_1 [g/cm^3] とし、前記結合樹脂粉末の

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

(3) 希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む混合物を前記結合樹脂粉末の軟化温度以上の温度で混練してなる希土類ボンド磁石用組成物であって、前記希土類磁石粉末の平均粒径を D_1 [μm]、密度を ρ_1 [g/cm^3] とし、前記結合樹脂粉末の

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

(4) さらに酸化防止剤を含む上記(1)ないし(3)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0015】(5) 希土類ボンド磁石用組成物中の前記酸化防止剤の含有量が、0.1~2.0wt%である上記(4)に記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0016】(6) 前記結合樹脂粉末の平均粒径 D_2

空孔率が高いという欠点がある。特に、熱硬化性樹脂を用いた場合には、空孔率が6%以上と高い値となる。そのため、機械的強度が弱く、耐食性に劣るという欠点がある。

【0007】本発明者による研究によれば、このような高空孔率となる第1の原因は、成形に供される希土類ボンド磁石用組成物(コンパウンド)の組成、状態や製造条件にあり、第2の原因是、成形条件にあることが判明した。

【0008】例えば、従来のコンパウンドを用いた場合、圧縮成形において、成形性を向上し、磁石中の空孔率を下げるためには、その成形圧を高くする必要があるが、そのために圧縮成形機が大型となったり、磁場中の成形に不利となる等の欠点があり、成形の容易性が劣る。また、成形圧をある程度高くしても、コンパウンドの組成、状態や製造条件が不適当であれば、空孔率の低減にも限界がある。

【0009】本発明の目的は、成形性に優れ、低空孔率の希土類ボンド磁石およびこのようないくつかの磁石を得ることができる希土類ボンド磁石用組成物ならびに希土類ボンド磁石の製造方法を提供することにある。

【0010】

【課題を解決するための手段】このような目的は、下記(1)~(21)の本発明により達成される。

【0011】(1) 希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む希土類ボンド磁石用組成物であって、前記希土類磁石粉末の平均粒径を D_1 [μm]、密度を ρ_1 [g/cm^3] とし、前記結合樹脂粉末の平均粒径を D_2 [μm]、密度を ρ_2 [g/cm^3] としたとき、下記式(1)を満足することを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

【0012】

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

平均粒径を D_2 [μm]、密度を ρ_2 [g/cm^3] としたとき、下記式(1)を満足することを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

【0013】

とし、前記結合樹脂粉末の平均粒径を D_2 [μm]、密度を ρ_2 [g/cm^3] としたとき、下記式(1)を満足することを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

【0014】

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 20 \quad \dots \quad (1)$$

は、1.0~2.0wt%である上記(1)ないし(5)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0017】(7) 希土類ボンド磁石用組成物中の前記結合樹脂粉末の含有量が、1~10wt%である上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0018】(8) 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素と、Coを主とする遷移金属とを基本成分とするものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0019】(9) 前記希土類磁石粉末は、R(ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0020】(10) 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0021】(11) 前記希土類磁石粉末は、上記8、9および10に記載の希土類磁石粉末のうちの少なくとも2種を混合したものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0022】(12) 上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を用いて製造されたことを特徴とする希土類ボンド磁石。

【0023】(13) 上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を用いて圧縮成形により製造されたことを特徴とする希土類ボンド磁石。

【0024】(14) 上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を用いて成形圧が50kgf/mm²以下の圧縮成形により製造されたことを特徴とする希土類ボンド磁石。

【0025】(15) 空孔率が2.8vol%以下である上記(12)ないし(14)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0026】(16) 無磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積(BH)_{max}が4.5MG0e以上である上記(12)ないし(15)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0027】(17) 磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積(BH)_{max}が1.0MG0e以上である上記(12)ないし(15)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0028】(18) 上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を製造し、この希土類ボンド磁石用組成物を用いて磁石形状に成形することを特徴とする希土類ボンド磁石の製造方法。

【0029】(19) 上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物を製造し、この希土類ボンド磁石用組成物を用いて温間成形により磁石形状に成形することを特徴とする希土類ボンド磁石の製造方法。

【0030】(20) 前記温間成形は、前記結合樹脂の軟化温度以上の温度で行う上記(19)に記載の希土類ボンド磁石の製造方法。

【0031】(21) 前記温間成形は、成形圧が50kgf/mm²以下の圧縮成形である上記(19)または(20)に記載の希土類ボンド磁石の製造方法。

【0032】

【発明の実施の形態】以下、本発明の希土類ボンド磁石用組成物、希土類ボンド磁石および希土類ボンド磁石の製造方法について詳細に説明する。

【0033】まず、本発明の希土類ボンド磁石用組成物について説明する。

【0034】本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、以下のよう希土類磁石粉末と結合樹脂粉末とを含む。さらに、以下のよう酸化防止剤を含むのが好ましい。

【0035】1. 希土類磁石粉末

希土類磁石粉末としては、希土類元素と遷移金属とを含む合金よりも好ましく、特に、次の[1]～[5]が好ましい。

【0036】[1] Smを主とする希土類元素と、Coを主とする遷移金属とを基本成分とするもの(以下、Sm-Co系合金と言う)。

【0037】[2] R(ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするもの(以下、R-Fe-B系合金と言う)。

【0038】[3] Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするもの(以下、Sm-Fe-N系合金と言う)。

【0039】[4] R(ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)とFe等の遷移金属とを基本成分とし、ナノメーターレベルで磁性相を有するもの(以下、ナノ結晶磁石と言う)。

【0040】[5] 前記[1]～[4]の組成のもののうち、少なくとも2種を混合したもの。この場合、混合する各磁石粉末の利点を併有することができ、より優れた磁気特性を容易に得ることができる。

【0041】Sm-Co系合金の代表的なものとしては、SmCo₅、Sm₂Tm₁₇(ただしTmは、遷移金属)が挙げられる。

【0042】R-Fe-B系合金の代表的なものとしては、Nd-Fe-B系合金、Pr-Fe-B系合金、Nd-Pr-Fe-B系合金、Ce-Nd-Fe-B系合金、Ce-Pr-Nd-Fe-B系合金、これらにおけるFeの一部をCo、Ni等の他の遷移金属で置換したもの等が挙げられる。

【0043】Sm-Fe-N系合金の代表的なものとしては、Sm₂Fe₁₇合金を窒化して作製したSm₂Fe₁₇N₃が挙げられる。

【0044】磁石粉末における前記希土類元素としては、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、M

ツシュメタルが挙げられ、これらを1種または2種以上含むことができる。また、前記遷移金属としては、Fe、Co、Ni等が挙げられ、これらを1種または2種以上含むことができる。また、磁気特性を向上させるために、磁石粉末中には、必要に応じ、B、Al、Mo、Cu、Ga、Si、Ti、Ta、Zr、Hf、Ag、Zn等を含有することもできる。

【0045】磁石粉末の製造方法は、特に限定されず、例えば、溶解・鋳造により合金インゴットを作製し、この合金インゴットを適度な粒度に粉碎し（さらに分級し）て得られたもの、アモルファス合金を製造するのに用いる急冷薄帯製造装置で、リボン状の急冷薄片（微細な多結晶が集合）を製造し、この薄片（薄帯）を適度な粒度に粉碎し（さらに分級し）て得られたもの等、いずれでもよい。

【0046】また、磁石粉末の平均粒径D₁は、特に限定されないが、0.5～50μm程度が好ましく、1～30μm程度がより好ましく、2～25μm程度がさらに好ましい。

【0047】なお、粒径の測定方法の1例には、F.S.S. S. (Fischer Sub-Sieve Sizer) 法が挙げられるが、これに限定されない。

【0048】また、磁石粉末の粒径分布は、均一でも、ある程度分散されていてもよいが、後述するような少量の結合樹脂で成形時の良好な成形性を得るために、磁石粉末の粒径分布は、ある程度分散されている（バラツキがある）のが好ましい。これにより、得られたボンド磁石の空孔率をより低減することもできる。なお、前記

【4】の場合、混合する磁石粉末の組成毎に、その平均粒径が異なっていてもよい。

【0049】2. 結合樹脂（バインダー）

結合樹脂（バインダー）としては、粉末状のもの（結合樹脂粉末）が用いられる。この結合樹脂としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂のいずれでもよい。一般に、結合樹脂として熱硬化性樹脂を用いた場合には、熱可塑性樹脂を用いた場合に比べ、磁石の空孔率が増大し易いが、後述するような条件の希土類ボンド磁石用組成物（コンパウンド）を用いて磁石を成形することにより、磁石の空孔率を低減することができる。

【0050】熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリアミド（例：ナイロン6、ナイロン46、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン612、ナイロン11、ナイロン12、ナイロン6-12、ナイロン6-66）、熱可塑性ポリイミド、芳香族ポリエステル等の液晶ポリマー、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンサルファイド、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン、変性ポリオレフィン、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエーテル、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド、ポリアセタール等、またはこれらを主とする共重合体、ブレンド体、ポリマー

アロイ等が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上を混合して用いることができる。

【0051】これらのうちでも、成形性の向上がより顕著であり、また機械的強度が強いことから、ポリアミド、耐熱性向上の点から、液晶ポリマー、ポリフェニレンサルファイドを主とするものが好ましい。また、これらの熱可塑性樹脂は、磁石粉末との混練性にも優れてい。

【0052】熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル（不飽和ポリエステル）樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上を混合して用いることができる。

【0053】これらのうちでも、成形性の向上がより顕著であり、また機械的強度が強く、耐熱性に優れるという点から、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂が好ましく、エポキシ樹脂が特に好ましい。また、これらの熱硬化性樹脂は、磁石粉末との混練性、混練の均一性にも優れている。

【0054】なお、使用される熱硬化性樹脂（未硬化）は、室温で固体（粉末状）のものが好ましい。

【0055】結合樹脂粉末の平均粒径D₂は、10～200μmであるのが好ましく、10～100μmであるのがより好ましい。特に、ポリアミドに代表される熱可塑性樹脂による場合、平均粒径D₂は、10～100μmであるのが好ましく、10～80μmであるのがより好ましい。

【0056】以上のような結合樹脂粉末の希土類ボンド磁石用組成物中の含有量は、1～10wt%程度であるのが好ましく、1～8wt%程度であるのがより好ましく、1～5wt%程度であるのがさらに好ましい。結合樹脂粉末の含有量が多過ぎると、磁気特性（特に磁気エネルギー積）の向上が図れず、また、結合樹脂粉末の含有量が少な過ぎると、成形性が低下し、極端な場合には成形が困難または不能となる。

【0057】3. 酸化防止剤

酸化防止剤は、後述する希土類ボンド磁石用組成物の混練の際等に、希土類磁石粉末の酸化劣化や結合樹脂の酸化による変質（希土類磁石粉末の金属成分が触媒として働くことにより生じる）を防止するために該組成物中に添加される添加剤である。この酸化防止剤の添加は、希土類磁石粉末の酸化を防止し、磁石の磁気特性の向上を図るために寄与するとともに、希土類ボンド磁石用組成物の混練時、成形時における熱的安定性の向上に寄与し、少ない結合樹脂量で良好な成形性を確保する上で重要な役割を果たしている。

【0058】酸化防止剤としては、希土類磁石粉末等の酸化を防止または抑制し得るものであればいかなるものでもよく、例えば、アミン系化合物、アミノ酸系化合

物、ニトロカルボン酸類、ヒドラジン化合物、シアノ化合物、硫化物等の、金属イオン、特にF_e成分に対しキレート化合物を生成するキレート化剤が好適に使用される。なお、酸化防止剤の種類、組成等については、これらのものに限定されることは言うまでもない。

【0059】このような酸化防止剤を添加する場合、希土類ボンド磁石用組成物中の酸化防止剤の添加量は、0.1～2wt%程度とするのが好ましく、0.5～1.5wt%程度とするのがより好ましい。この場合、酸化防止剤の添加量は、結合樹脂の添加量に対し2～150%程度であるのが好ましく、30～100%程度であるのがより好ましい。

【0060】なお、本発明では、酸化防止剤の添加量は、前記範囲の下限値以下であってもよく、また、無添加であってもよいことは、言うまでもない。

【0061】このような酸化防止剤は、希土類ボンド磁石用組成物の混練時や成形時等の中間工程において揮発したり、変質したりするので、製造された希土類ボンド磁石中には、その一部が残留した状態で存在している。従って、希土類ボンド磁石中の酸化防止剤の含有量は、希土類ボンド磁石用組成物中の酸化防止剤の添加量に対し、例えば10～90%程度、特に20～80%程度と

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 2.0 \quad \dots \quad (I)$$

また、下記式 (II) を満足するものであるのがより好ましく、下記式 (III) を満足するものであるのがさらに

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 1.0 \quad \dots \quad (II)$$

$$0.03 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 1.0 \quad \dots \quad (III)$$

このような条件を満足する場合には、空孔率が低く、また優れた磁気特性の希土類ボンド磁石が得られる。すなわち、 $(D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1)$ が前記下限値未満、換言すれば密度の高い磁石粉末の粒度が大きく、密度の小さい樹脂粉末の粒度が小さくなると、混合時にこの2種の粉末が分離した状態となり、樹脂粉末は浮遊しやすくなるため均一に分散せしむことが困難となる。この結果、混合物の分散状態に不均一が生じ、混練時の混練トルクの変動が大きくなり、混練を行うことが困難となる。また混練物も不均一となるため、これを用いた時の成形性や密度、機械的強度等の成形品特性のばらつきが大きくなる。また、磁石粉末が大きすぎると成形時の給材性が低下し、成形品の空孔率は増加する。樹脂粉末が小さくなると樹脂特性が低下し、機械的強度の低下が生じる。

【0067】 $(D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1)$ が前記上限値より大きい時、換言すれば磁石粉末の粒度が小さく、樹脂粉末の粒度が非常に大きい場合には、粒度差が大きくなることによる分散性の低下が生じる。希土類ボンド磁石の場合、樹脂成分は磁石粉末に比べ、非常に少量であり、この傾向は磁石の磁気性能を上げるほど顕著になる。粒度の大きな樹脂粉末が少量しかない場合、磁石粉末間に樹脂成分を均一に分散させるのは困難となる。こ

なる。

【0062】4. その他の添加剤

また、希土類ボンド磁石用組成物には、必要に応じ、例えば、可塑剤（例えば、ステアリン酸亜鉛等の脂肪酸塩、脂肪酸）、潤滑剤（例えば、シリコーンオイル、各種ワックス、脂肪酸、アルミナ、シリカ、チタニア等の各種無機潤滑剤）、硬化剤、硬化促進剤、その他成形助剤等の各種添加剤を添加することができる。

【0063】可塑剤の添加は、成形時の流動性を向上させるので、より少ない結合樹脂の添加量で同様の特性を得ることができ、また、より低い成形圧で圧縮成形することを可能とする。潤滑剤の添加についても同様である。可塑剤の添加量は、0.01～0.2wt%程度であるのが好ましく、潤滑剤の添加量は、0.05～0.5wt%程度であるのが好ましい。

【0064】さて、以上のような希土類ボンド磁石用組成物では、希土類磁石粉末の平均粒径をD₁ [μm]、密度をρ₁ [g/cm³] とし、結合樹脂粉末の平均粒径をD₂ [μm]、密度をρ₂ [g/cm³] としたとき、下記式 (I) を満足するものである。

【0065】

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 2.0 \quad \dots \quad (I)$$

好ましい。

【0066】

$$0.02 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 1.0 \quad \dots \quad (II)$$

$$0.03 \leq (D_2 \rho_2) / (D_1 \rho_1) \leq 1.0 \quad \dots \quad (III)$$

の結果下限値未満の時と同様、混練性の低下や混練物の成形性や成形品の特性の低下が生じる。

【0068】本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、前述した希土類磁石粉末と、熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂と、必要に応じ添加される酸化防止剤等の添加剤とを混合した混合物または該混合物を混練してなるものである。

【0069】この場合、前記混合は、例えば、ヘンシェルミキサー、V型混合機等の混合機や攪拌機を用いて行われる。また、混合物の混練は、例えば、2軸押出混練機、ロール式混練機、ニーダー等の混練機を用いて行われる。

【0070】また、混合物の混練は、用いる結合樹脂の軟化温度（軟化点またはガラス転移点）以上の温度で行われるのが好ましい。これにより、混練の効率が向上し、常温で混練する場合に比べてより短時間で均一に混練することができるとともに、結合樹脂の粘度が下がった状態で混練されるので、希土類磁石粉末の周囲を結合樹脂が覆うような状態となり、希土類ボンド磁石用組成物中およびそれより製造された磁石中の空孔率の減少に寄与する。

【0071】なお、混練に伴う材料自体の発熱等により、混練温度は変化し易いので、例えば加温・冷却手段

を備え、温度制御が可能な混練機を用いて混練するのが好ましい。

【0072】また、希土類ボンド磁石用組成物（混練物の場合）の密度は、理論密度（組成物中の空孔を0としたときの密度）の80%以上であるのが好ましく、85%以上であるのがより好ましい。また、希土類ボンド磁石用組成物（混練物の場合）の密度は、希土類磁石粉末の密度の60%以上であるのが好ましく、70%以上であるのがより好ましい。希土類ボンド磁石用組成物の密度がこののような範囲であると、成形圧をより低くすることができる。

【0073】また、本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、さらにペレット化されたものであってもよい。

【0074】次に、本発明の希土類ボンド磁石の製造方法について説明する。本発明の希土類ボンド磁石の製造方法は、前述した希土類ボンド磁石用組成物を製造し、この組成物を用いて、例えば圧縮成形法、押出成形法または射出成形法により磁石形状に成形することにより行われる。これらの成形法のうちでは圧縮成形法が最適であり、以下、代表的に圧縮成形法による製造方法について説明する。

【0075】前述した希土類ボンド磁石用組成物（コンパウンド）を製造し、この組成物を圧縮成形機の金型内に充填し、磁場中（配向磁場が例えば5～20kOe、配向方向は、縦、横、ラジアル方向のいずれも可）または無磁場中で圧縮成形する。

【0076】この圧縮成形は、冷間成形（常温付近での成形）、温間成形のいずれでもよいが、好ましくは温間成形とされる。すなわち、成形金型を加熱する等により、成形時の材料温度が用いる結合樹脂の軟化温度以上の温度となるようにするのが好ましい。

【0077】このような温間成形とすることにより、金型内での成形材料の流動性が向上し、低い成形圧で、寸法精度のよい成形をすることができる。すなわち、好ましくは50kgf/mm²以下、より好ましくは35kgf/mm²以下、さらに好ましくは20kgf/mm²以下の成形圧で成形（賦形）することができ、成形への負荷が少なく、成形が容易となるとともに、リング状、平板状、湾曲板状等の薄肉部を有する形状のものや長尺なものでも、良好かつ安定した形状、寸法のものを量産することができる。

【0078】また、温間成形とすることにより、前述したような低い成形圧でも、得られた磁石の空孔率を後述するように低くすることができます。

【0079】さらに、温間成形とすることにより、金型内での成形材料の流動性が向上し、磁気配向性が向上するとともに、成形時における希土類磁石粉末の保磁力の低下により、磁場中成形の場合、見かけ上高い磁場をかけたものとなるので、配向方向にかかわらず、磁気特性を向上することができる。

【0080】このようにして圧縮成形した後、成形金型から除材して、希土類ボンド磁石を得る。

【0081】結合樹脂粉末が熱硬化性樹脂よりなる場合、圧縮成形された成形体を、その熱硬化性樹脂の硬化温度以上の温度に加熱して硬化させる。これにより、希土類ボンド磁石が完成する。この熱硬化性樹脂の硬化は、成形金型から取り出された成形体に熱処理を施す方法、成形金型での圧縮成形後、そのまま金型温度を上昇させる方法のいずれの方法により行ってもよい。

【0082】次に、本発明の希土類ボンド磁石について説明する。本発明の希土類ボンド磁石は、前述した希土類ボンド磁石用組成物を用い、好ましくは前述した希土類ボンド磁石の製造方法によって製造されるものである。

【0083】このような本発明の希土類ボンド磁石において、空孔率は、2.8 vol%以下であるのが好ましく、2.4 vol%以下であるのがより好ましく、2.0 vol%以下であるのがさらに好ましい。空孔率が2.8 vol%を超えると、磁石粉末の組成、結合樹脂の組成、含有量等の他の条件によっては、磁石の機械的強度および耐食性が低下するおそれがある。

【0084】このような本発明の希土類ボンド磁石は、磁石粉末の組成、磁石粉末の含有量の多さ等から、等方性磁石であっても、優れた磁気特性を有する。

【0085】すなわち、本発明の希土類ボンド磁石は、無磁場中で成形されたものの場合、磁気エネルギー積(BH)_{max}が4.5MGoe以上であるのが好ましく、6MGoe以上であるのがより好ましい。また、磁場中で成形されたものの場合、磁気エネルギー積(BH)_{max}が10MGoe以上であるのが好ましく、12MGoe以上であるのがより好ましい。

【0086】なお、本発明の希土類ボンド磁石の形状、寸法等は特に限定されず、例えば、形状に関しては、例えば、円柱状、角柱状、円筒状、円弧状、平板状、湾曲板状等のあらゆる形状のものが可能であり、その大きさも、大型のものから超小型のものまであらゆる大きさのものが可能である。

【0087】

【実施例】以下、本発明の具体的実施例について説明する。

【0088】（実施例1～16、比較例1～4）下記組成①、②、③、④、⑤、⑥、⑦の7種の希土類磁石粉末と、下記A、B、C、D、E、Fの6種の結合樹脂粉末と、ヒドラジン系酸化防止剤と、潤滑剤として脂肪酸と、可塑剤として金属せっけんとを用意し、これらを下記表1に示す所定の組み合わせおよび量で混合した。

【0089】このとき、酸化防止剤、潤滑剤、可塑剤はそれが固体状のときには、各実施例の樹脂の粒径と同等の粒径に粒度調整を行った。

【0090】また、それぞれについて、希土類磁石粉末

の平均粒径 D_1 、密度 ρ_1 、結合樹脂粉末の平均粒径 D_2 、密度 ρ_2 に関する値を下記表2、表3に示す。

【0091】なお、これらは、F.S.S.S. 法により測定した。また、数種類の磁粉を混合したときの密度 ρ 、平均粒径 D は粉末の重量比、すなわち、下記式から算出した。

【0092】 $\rho (A+B+C) = \rho_A \cdot x + \rho_B \cdot y + \rho_C \cdot z$ $D (A+B+C) = D_A \cdot x + D_B \cdot y + D_C \cdot z$ 但し、上記式中、 ρ_A 、 ρ_B 、 ρ_C は、それぞれ磁粉A、B、Cの密度、 D_A 、 D_B 、 D_C は、それぞれ磁粉A、B、Cの平均粒径、 x 、 y 、 z は、それぞれ磁粉A、B、Cの重量比であり、 $x+y+z=1$ である。

【0093】 ①急冷Nd12Fe78Co4B6粉末
 ②急冷Nd8Pr4Fe82B6粉末
 ③急冷Nd12Fe82B6粉末
 ④Sm(Co0.604Cu0.06Fe0.32Zr0.016)8.0粉末
 ⑤Sm2Fe17N3粉末

⑥HDDR法による異方性Nd13Fe69Co11B6Ga1粉末

⑦ナノ結晶Nd5.5Fe66B18.5Co5Cr5粉末
 熱可塑性樹脂：

A. ポリアミド（ナイロン12）（熱変形温度：145°C、融点175°C）

B. 液晶ポリマー（熱変形温度：180°C、融点280°C）

C. ポリフェニレンサルファイド（PPS）（熱変形温度：260°C、融点280°C）

熱硬化性樹脂：

D. エポキシ樹脂（軟化温度：80°C、硬化温度：120°C以上）

E. エポキシ樹脂（軟化温度：室温以下、硬化温度：100°C以上）

F. ポリイミド樹脂（軟化温度：95°C、硬化温度：180°C以上）

【0094】

【表1】

組成 [wt%]		組成 [wt%]	
実施例1	磁粉① : 95.0 樹脂A : 4.5 酸化防止剤 : 0.5	実施例11	磁粉④ : 36.6 磁粉⑤ : 24.3 磁粉⑥ : 36.6 樹脂E : 2.4 潤滑剤 : 0.1
実施例2	磁粉② : 96.0 樹脂A : 3.0 酸化防止剤 : 1.0	実施例12	磁粉④ : 99.0 樹脂F : 1.0
実施例3	磁粉④ : 95.00 樹脂A : 4.95 潤滑剤 : 0.05	実施例13	磁粉③ : 94.5 樹脂A : 3.2 酸化防止剤 : 2.0 潤滑剤 : 0.3
実施例4	磁粉⑤ : 94.00 樹脂B : 5.09 酸化防止剤 : 0.80 潤滑剤 : 0.10 可塑剤 : 0.01	実施例14	磁粉① : 95.0 樹脂A : 4.0 酸化防止剤 : 1.0
実施例5	磁粉⑥ : 97.0 樹脂A : 1.5 酸化防止剤 : 1.4 潤滑剤 : 0.1	実施例15	磁粉③ : 90.0 樹脂A : 9.7 酸化防止剤 : 0.1 可塑剤 : 0.2
実施例6	磁粉⑦ : 97.5 樹脂A : 1.3 酸化防止剤 : 1.2	実施例16	磁粉④ : 92.0 樹脂C : 7.5 可塑剤 : 0.5
実施例7	磁粉④ : 72.00 磁粉⑤ : 24.00 樹脂A : 2.70 酸化防止剤 : 1.20 潤滑剤 : 0.06 可塑剤 : 0.05	比較例1	磁粉⑦ : 95.0 樹脂A : 4.5 酸化防止剤 : 0.5
実施例8	磁粉④ : 98.0 樹脂B : 1.0 酸化防止剤 : 1.0	比較例2	磁粉⑥ : 96.0 樹脂B : 3.0 酸化防止剤 : 0.8 潤滑剤 : 0.2
実施例9	磁粉④ : 66.5 磁粉⑤ : 29.0 樹脂C : 2.9 酸化防止剤 : 1.4 潤滑剤 : 0.2	比較例3	磁粉④ : 96.0 樹脂C : 2.8 酸化防止剤 : 1.0 潤滑剤 : 0.1 可塑剤 : 0.1
実施例10	磁粉④ : 98.5 樹脂D : 1.3 酸化防止剤 : 0.2	比較例4	磁粉⑥ : 97.00 樹脂D : 2.40 酸化防止剤 : 0.50 潤滑剤 : 0.05 可塑剤 : 0.05

【0095】

【表2】

	磁石粉末		結合樹脂粉末		$\frac{D_2 \cdot \rho_2}{D_1 \cdot \rho_1}$
	平均粒径 D_1 [μm]	密度 ρ_1 [g/cm^3]	平均粒径 D_2 [μm]	密度 ρ_2 [g/cm^3]	
実施例1	50	7.5	10	1.02	0.03
実施例2	25	7.5	30	1.02	0.16
実施例3	50	8.5	10	1.02	0.02
実施例4	1	7.6	100	1.4	18.42
実施例5	30	7.6	50	1.02	0.22
実施例6	25	7.5	80	1.02	0.44
実施例7	12	8.3	75	1.02	0.77
実施例8	10	8.5	60	1.4	0.99
実施例9	7	8.2	100	1.36	2.37
実施例10	7	8.5	100	1.2	2.02

表3へ続く

【0096】

	磁石粉末		結合樹脂粉末		$\frac{D_2 \cdot \rho_2}{D_1 \cdot \rho_1}$
	平均粒径 D_1 [μm]	密度 ρ_1 [g/cm^3]	平均粒径 D_2 [μm]	密度 ρ_2 [g/cm^3]	
実施例11	10	7.9	100	1.2	1.52
実施例12	1.7	7.6	90	1.4	9.75
実施例13	6	7.5	200	1.02	4.53
実施例14	8	7.6	150	1.02	2.55
実施例15	5	7.5	200	1.02	5.44
実施例16	5	8.5	100	1.36	3.20
比較例1	80	7.5	2	1.02	0.005
比較例2	80	8.5	5	1.4	0.01
比較例3	3	8.5	500	1.36	26.67
比較例4	2	7.6	500	1.2	39.47

【0097】次に、表1に示す組成の各混合物をスクリュー式混練機（装置a）またはニーダー（装置b）を用いて十分に混練し、希土類ボンド磁石用組成物（コンパウンド）を得た。このときの混練条件を下記表4、表5に示す。なお、コンパウンドの密度は、いずれも、理論密度の85%以上、磁石粉末の70%以上を達成している。

【0098】次に、前記コンパウンドを用い、プレス成形機により磁場中または無磁場中で圧縮成形し、除材して、所望形状の希土類ボンド磁石を得た。結合樹脂として熱硬化性樹脂を用いた場合には、温度120～250°C、硬化時間30～300分の条件で硬化させて、希土類ボンド磁石を得た。

【0099】なお、実施例13、14では、前記コンパウンドを用いて押出成形機により押出成形し、実施例15、16では、前記コンパウンドを用いて射出成形機に

より射出成形し、以下同様にして希土類ボンド磁石を得た。

【0100】このときの成形条件を下記表4、表5に併せて示す。また、得られた磁石の形状、寸法、組成、外観（目視観察）、諸特性を下記表6、表7、表8、表9に示す。

【0101】なお、表6～表9中の機械的強度は、別途に外径15mm、高さ3mmの試験片を無磁場中で、表4、表5に示す条件で成形し、この試験片を用い剪断打ち抜き法により評価した。

【0102】また、表6～表9中の耐食性は、得られた希土類ボンド磁石に対し、恒温恒湿槽により80°C、90%RHの条件で加速試験を行い、錆びの発生までの時間により、○、△、×の4段階で評価した。

【0103】

【表4】

	混練条件			成形条件			
	装置	混練温度 [°C]	混練時間 [min]	成形方法	金型内の材料温度 [°C]	成形圧力 [kgf/mm²]	配向磁場 [kOe]
実施例1	a	150~250	15	圧縮成形	220	10	無磁場中
実施例2	a	150~250	10	圧縮成形	230	10	無磁場中
実施例3	a	150~250	20	圧縮成形	250	20	15
実施例4	a	150~350	15	圧縮成形	290	20	12
実施例5	a	150~250	15	圧縮成形	200	35	20
実施例6	a	150~250	25	圧縮成形	210	30	無磁場中
実施例7	a	150~250	20	圧縮成形	220	20	15
実施例8	a	150~350	15	圧縮成形	320	15	15
実施例9	a	200~350	10	圧縮成形	300	15	15
実施例10	b	50~120	20	圧縮成形	120	40	15

表5へ続く

【0104】

【表5】

	混練条件			成形条件			
	装置	混練温度 [°C]	混練時間 [min]	成形方法	金型内の材料温度 [°C]	成形圧力 [kgf/mm²]	配向磁場 [kOe]
実施例11	b	15~50	30	圧縮成形	室温	50	15
実施例12	b	150~250	15	圧縮成形	200	50	15
実施例13	a	150~250	15	押出成形	230	—	無磁場中
実施例14	a	150~250	15	押出成形	230	—	無磁場中
実施例15	a	150~250	20	射出成形	260	—	無磁場中
実施例16	a	200~350	20	射出成形	320	—	15
比較例1	b	150~250	20	圧縮成形	230	20	無磁場中
比較例2	a	150~350	20	圧縮成形	300	20	15
比較例3	a	200~350	10	圧縮成形	320	20	15
比較例4	a	50~120	15	圧縮成形	120	35	15

注) 押出成形の材料温度は加熱温度
射出成形の材料温度は射出時の温度を示す。

【0105】

【表6】

	磁石形状	磁石寸法 [mm]	磁石組成 [wt%]	磁気エネルギー積 (BH) _{max} [MGoe]	密度 ρ [g/cm ³]	空孔率 [%]	外観	機械的強度 [kgf/mm ²]	耐食性
実施例1	円筒状	外径: 10.0 肉厚: 2.0 高さ: 10.0	磁粉①: 95.4 樹脂A: 4.5 酸化防止剤: 0.1	8.8	5.83	0.1	良好	7.92	○
実施例2	円筒状	外径: 8.0 肉厚: 1.5 高さ: 7.0	磁粉②: 96.5 樹脂A: 3.0 酸化防止剤: 0.5	10.5	6.16	0.4	良好	8.02	○
実施例3	円筒状	外径: 30.0 肉厚: 1.0 高さ: 5.0	磁粉④: 95.0 樹脂A: 5.0 潤滑剤: 微量	12.1	6.21	0.2	良好	7.51	○
実施例4	円筒状	外径: 15.0 肉厚: 1.2 高さ: 4.0	磁粉⑤: 94.2 樹脂B: 5.1 酸化防止剤: 0.7 潤滑剤・可塑剤: 微量	18.2	5.90	1.7	良好	9.25	○
実施例5	円筒状	外径: 50.0 肉厚: 1.0 高さ: 5.0	磁粉⑥: 97.5 樹脂A: 1.5 酸化防止剤: 1.0 潤滑剤・可塑剤: 微量	19.5	6.50	0.6	良好	8.05	○

表7へ続く

【0106】

【表7】

	磁石形状	磁石寸法 [mm]	磁石組成 [wt%]	磁気エネルギー積 (BH) _{max} [MGoe]	密度 ρ [g/cm ³]	空孔率 [%]	外観	機械的強度 [kgf/mm ²]	耐食性
実施例6	直方体	幅: 15.0 奥行: 12.0 高さ: 3.0	磁粉⑦: 97.7 樹脂A: 1.3 酸化防止剤: 1.0	10.4	6.56	0.8	良好	7.48	○
実施例7	円筒状	外径: 25.0 肉厚: 0.7 高さ: 6.0	磁粉④: 72.2 磁粉⑤: 24.1 樹脂A: 2.7 酸化防止剤: 1.0 潤滑剤・可塑剤: 微量	18.5	6.56	0.2	良好	7.61	○
実施例8	円筒状	外径: 40.0 肉厚: 1.5 高さ: 8.0	磁粉④: 98.1 樹脂B: 1.0 酸化防止剤: 0.9	18.8	7.48	2.3	良好	8.91	○
実施例9	円筒状	外径: 27.0 肉厚: 0.9 高さ: 4.5	磁粉④: 67.2 磁粉⑥: 28.8 樹脂C: 2.9 酸化防止剤: 1.1 潤滑剤: 微量	17.1	6.58	2.5	良好	8.10	○
実施例10	円柱状	外径: 15.0 高さ: 5.0	磁粉④: 98.7 樹脂D: 1.3 酸化防止剤: 微量	20.5	7.69	2.4	良好	4.73	○

表8へ続く

【0107】

【表8】

	磁石形状	磁石寸法 [mm]	磁石組成 [wt%]	磁気エネルギー積 (BH) max [MGOe]	密度 ρ [g/cm ³]	空孔率 [%]	外観	機械的強度 [kgf/mm ²]	耐食性
実施例11	曲板状	外径: 12.0 肉厚: 1.1 角度: 90.0 高さ: 10.0	磁粉④: 36.6 磁粉⑤: 24.4 磁粉⑥: 36.6 樹脂E: 2.4 潤滑剤: 微量	19.3	6.83	1.9	良好	4.91	○
実施例12	立方体	高さ: 10.0	磁粉④: 99.0 樹脂F: 1.0	21.0	7.88	2.8	良好	4.51	○
実施例13	円筒状	外径: 18.0 肉厚: 1.0 高さ: 20.0	磁粉③: 95.2 樹脂A: 3.2 酸化防止剤: 1.6 潤滑剤: 微量	6.0	5.75	1.2	良好	7.76	○
実施例14	円筒状	外径: 5.0 内厚: 0.5 高さ: 30.0	磁粉①: 95.3 樹脂A: 4.0 酸化防止剤: 0.7	8.1	5.80	0.4	良好	7.86	○
実施例15	円筒状	外径: 30.0 肉厚: 1.2 高さ: 2.0	磁粉③: 90.3 樹脂A: 9.7 酸化防止剤: 微量 可塑剤: 微量	4.5	4.59	1.5	良好	7.10	○
実施例16	円筒状	外径: 20.0 肉厚: 0.9 高さ: 3.0	磁粉④: 92.4 樹脂C: 7.5 可塑剤: 0.1	10.0	6.03	0.5	良好	7.23	○

表9へ続く

【0108】

【表9】

	磁石形状	磁石寸法 [mm]	磁石組成 [wt%]	磁気エネルギー積 (BH) max [MGOe]	密度 ρ [g/cm ³]	空孔率 [%]	外観	機械的強度 [kgf/mm ²]	耐食性
比較例1	円柱状	外径: 10.0 高さ: 7.0	磁粉④: 95.2 樹脂A: 4.5 酸化防止剤: 0.3	5.7	5.24	9.4	不良 (表面粗)	3.79 (均等大)	×
比較例2	円柱状	外径: 10.0 高さ: 7.0	磁粉④: 96.4 樹脂B: 3.0 酸化防止剤: 0.6 潤滑剤: 微量	11.7	5.7	11.9	不良 (表面粗)	3.94 (均等大)	△
比較例3	円筒状	外径: 20.0 内厚: 1.0 高さ: 5.0	磁粉④: 96.5 樹脂C: 2.8 酸化防止剤: 0.7 潤滑剤・可塑剤: 微量	測定不可	—	—	不良 (表面粗)	測定不可	△
比較例4	円筒状	—	—	—	—	—	混練不良につき、成形不可	—	—

【0109】上記各表に示すように、実施例1～16の希土類ボンド磁石は、いずれも、空孔率が低く、成形性、磁気特性（最大磁気エネルギー積）、耐食性に優れ、機械的強度も高いものであることが確認された。また、これらの希土類ボンド磁石は、いずれも、形状が安定しており、寸法精度が高いものであった。

【0110】圧縮成形による実施例10～12では、50kgf/mm²以下の低い成形圧でこのような特性の希土類ボンド磁石が得られ、特に温間成形による実施例1～9では更に低い35kgf/mm²以下の成形圧でこのような特性の希土類ボンド磁石が得られた。実施例13～16では、複雑な形状のものでも、優れた成形性および寸法精度で製造できることが確認された。

【0111】これに対し、比較例1、2の希土類ボンド磁石は、得られた磁石中の空孔率が高く、そのため、機械的強度が低く、耐食性および磁気特性が劣るものであった。また、成形された磁石に、片薄（肉厚、高さ等の寸法にバラツキが生じる現象）が生じ、寸法精度が低いものであった。

【0112】また、比較例3では、磁石粉末に比べ樹脂粉末の粒度が大きすぎるため、磁石粉末と樹脂粉末の分散が不十分となり、均一な成形品を得ることが困難であった。また、成形品の空孔率が非常に高くなり、樹脂成分による磁石粉末の結合力が小さいため、からうじて成形体を得ることができたものの、強度が小さく、表面の粉末が脱落していくため、密度測定や磁気性能測定を行うことができなかった。

【0113】また、比較例4では、磁石粉末と樹脂粉末の分散不良から、混練時の混練トルク変動が非常に大きくなるために、混練中に混練トルクオーバーとなって混練を行うことができなかった。

【0114】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、成形性に優れ、空孔率が低く、耐食性に優れ、機械的強度および寸法精度が高く、磁気特性に優れた希土類ボンド磁石を提供することができる。また、圧縮成形により製造する場合、低い成形圧で、このような特性の磁石を得ることができ、製造上有利となる。

【0115】特に、用いる結合樹脂の軟化温度以上の温度で混練してなる希土類ボンド磁石用組成物の場合や、

温間成形により成形した場合には、それらとの相乗効果により、前記効果がより顕著に発現する。